



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Shinsuke TOYOMASU, et al.

GAU: 1711

SERIAL NO: 10/802,851

EXAMINER:

FILED: March 18, 2004

FOR: RESIN COMPOSITION FOR OPTICAL FILM, OPTICAL FILM AND PROCESS FOR PRODUCING THE OPTICAL FILM

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e): Application No. Date Filed

☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
JAPAN	2003-094888	March 31, 2003
JAPAN	2004-025549	February 2, 2004

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s)
- ☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.
Norman F. Oblon

Corwin Paul Umbach

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 05/03)

Corwin P. Umbach, Ph.D.
Registration No. 40,211

BEST AVAILABLE COPY

10/802,851

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2003年 3月31日

出 願 番 号

Application Number:

特願2003-094888

[ST. 10/C]:

[JP2003-094888]

出 願 人

Applicant(s):

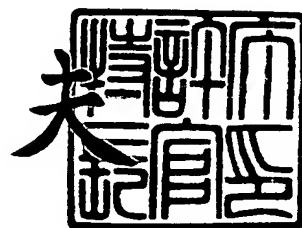
東ソー株式会社

CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

2004年 3月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井 康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 PA211-1028

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C08F222/40

【発明者】

 【住所又は居所】 三重県四日市市別名 6 - 7 - 5

 【氏名】 豊増 信之

【発明者】

 【住所又は居所】 愛知県海部郡蟹江町西ノ森一丁目 1 0 2 番地

 【氏名】 猪飼 陽二郎

【特許出願人】

 【識別番号】 000003300

 【氏名又は名称】 東ソー株式会社

 【代表者】 土屋 隆

 【電話番号】 (03)5427-5134

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 003610

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 図面 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

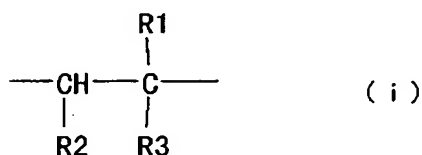
【書類名】 明細書

【発明の名称】 光学フィルム

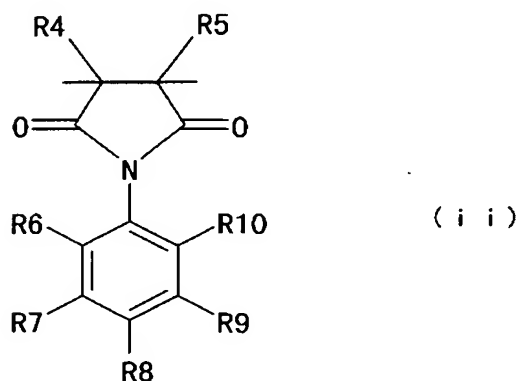
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記の式 (i) で表される α -オレフィン単位及び式 (ii) で表される N-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体 (a) と、アクリロニトリル-スチレン共重合体 (b) 又はアクリロニトリル-ブタジエーン-スチレンユニット共重合体 (c) とからなる樹脂組成物であって、それぞれの共重合体の分子量がポリスチレン換算の重量平均分子量として 5×10^3 以上 5×10^6 以下である樹脂組成物をフィルム成形して、更にガラス転移温度 (以下 T_g と称する) を基準として、 $T_g \pm 20^\circ\text{C}$ の範囲で延伸加工し、負の複屈折性を示すことを特徴とする光学フィルム。

【化 1】



【化 2】



(ここで、式 (i) において、R1、R2、R3 はそれぞれ水素又は炭素数 1 ～ 6 のアルキル基である。式 (ii) において、R4、R5 はそれぞれ水素又は炭素数 1 ～ 8 の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、R6、R7、R8、R9、R10 はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、

水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。)

【請求項2】請求項1に記載の光学フィルムであって、樹脂組成物中の共重合体(a)が30～95重量%であり、共重合体(b)又は共重合体(c)が70～5重量%であることを特徴とする光学フィルム。

【請求項3】請求項1又は請求項2に記載の光学フィルムの延伸加工が、一軸延伸配向であることを特徴とする光学フィルム。

【請求項4】請求項1又は請求項2に記載の光学フィルムの延伸加工が、二軸延伸配向であることを特徴とする光学フィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を示す特定の樹脂組成物を用いてなる光学フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、ブラウン管型テレビモニターに代わる薄型液晶表示素子や、エレクトロルミネッセンス素子などが開発され、光学異方性を制御したフィルム材料が要求されている。透明樹脂材料は光学フィルムとして軽量性、生産性及びコストの面から多用される状況にある。

【0003】

従来、透明樹脂材料の光学異方性を発現させる方法として、フィルムの延伸配向が行われている。この延伸配向によれば、ポリメチルメタクリレート（以下PMMAと称する）やポリスチレン（以下PSと称する）は負の複屈折性を示し、ポリカーボネート（以下PCと称する）や非晶性の環状ポリオレフィン（以下APOと称する）は正の複屈折性を示すことが知られている（例えば、非特許文献1、非特許文献2参照）。

【0004】

しかしながら、PMMAやPSはガラス転移温度（以下T_gと称する）が10

0℃付近にあり、耐熱性が不十分なことと脆いことなどから用途に制限を受けていた。一方、PCやAPOなどはT_gが140℃程度であり、耐熱性や力学特性に優れると共に正の複屈折性を示す材料であり、透明耐熱性を示し、力学的にも優れる負の複屈折性材料がなかった。このため光学フィルムとしては、専ら正の複屈折性を示す樹脂材料を用いて製造されており、負の複屈折性を示す耐熱性の光学フィルムがなかった。

【0005】

【非特許文献1】小池康博著、「高分子のOne Point 10高分子の光物性」共立出版、2000年5月10日発行

【非特許文献2】南 幸治著、「機能材料2000年8月号 Vol. 20、No. 8」シーエムシー出版、2000年8月5日発行、p23-33

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、上述の事実に鑑みなされたものであって、その目的とするところは、耐熱性、力学性に優れかつ負の複屈折性を示す光学フィルムを提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、鋭意検討した結果、 α -オレフィンユニットと特定のN-フェニル置換マレイミドユニットから構成される共重合体(a)とアクリロニトリル-スチレン共重合体(b)又はアクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体(c)とからなる樹脂組成物を用いてなる光学フィルムが所期の目的を達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0008】

すなわち、本発明は、下記の式(i)で表される α -オレフィン単位及び式(ii)で表されるN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体(a)と、アクリロニトリル-スチレン共重合体(b)又はアクリロニトリル-ブタジエン-スチレンユニット共重合体(c)とからなる樹脂組成物であって、それぞれの共重合体の分子量がポリスチレン換算の重量平均分子量として 5×10^3 以上5

×10⁶以下である樹脂組成物をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下 T_g と称する）を基準として、T_g ± 20℃ の範囲で延伸加工し、負の複屈折性を示すことを特徴とする光学フィルムに関するものである。

【0009】

本発明の共重合体の構成単位である式 (i) において、R₁、R₂、R₃ はそれぞれ水素又は炭素数 1～6 のアルキル基である。ここで、R₁、R₂、R₃ が炭素数 6 を越えるアルキル置換基の場合にはガラス転移温度が著しく低下したり、このアルキル置換基が結晶化することで透明性を損なうなどの問題がある。

【0010】

本発明において、式 (i) の具体的な例示としては、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2-メチル-1-ヘプテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン、エチレン、プロピレン、1-ブテン及び 1-ヘキセンなどのオレフィン類が挙げられ、このうち 1, 2-ジ置換オレフィン、特にイソブテンが好ましい。

【0011】

これらのオレフィン類は 1 種又は 2 種以上組み合わせられたものでもよく、その比率は限定されない。

【0012】

本発明において、式 (ii) において、R₄、R₅ はそれぞれ水素又は炭素数 1～8 の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、R₆、R₇、R₈、R₉、R₁₀ はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数 1～8 の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。

【0013】

式 (ii) において、R₄、R₅、R₆、R₇、R₈、R₉、R₁₀ が炭素数 8 を越えるアルキル置換基の場合にはガラス転移温度が著しく低下したり、このアルキル置換基が結晶化することで透明性を損なうなどの問題がある。

【0014】

本発明において、式 (i i) の具体的な例示としては、マレイミド化合物の N 置換基として無置換フェニル基及びフェニル化合物に置換基を導入したものを用いることができ、例えば N- (2-メチルフェニル) マレイミド、N- (2-エチルフェニル) マレイミド、N- (2-n-プロピルフェニル) マレイミド、N- (2-イソプロピル) マレイミド、N- (2-n-ブチルフェニル) マレイミド、N- (2-sec-ブチルフェニル) マレイミド、N- (2-tert-ブチルフェニル) マレイミド、N- (2-n-ペンチルフェニル) マレイミド、N- (2-tert-ペンチルフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジメチルフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジエチルフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジ-n-プロピルフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジ-イソプロピルフェニル) マレイミド、N- (2-メチル, 6-エチルフェニル) マレイミド、N- (2-メチル, 6-イソプロピルフェニル) マレイミド、N- (2-クロロフェニル) マレイミド、N- (2-ブロモフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジクロロフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジブロモフェニル) マレイミド、N- 2-ビフェニルマレイミド、N- 2-ジフェニルエーテルマレイミド、N- (2-シアノフェニル) マレイミド、N- (2-ニトロフェニル) マレイミド、N- (2, 4, 6-トリメチルフェニル) マレイミド、N- (2, 4-ジメチルフェニル) マレイミド、N- パーブロモフェニルマレイミド、N- (2-メチル, 4-ヒドロキシフェニル) マレイミド、N- (2, 6-ジエチル, 4-ヒドロキシフェニル) マレイミドなどが挙げられ、これらは 1 種又は 2 種以上組み合わせたものでもよく、その比率は限定されない。

【0015】

本発明において、アクリロニトリル-スチレン共重合体 (b) は、その共重合体中にアクリロニトリルユニットを 20~35 重量%、スチレンユニットを 80~65 重量%含有するものを用いることができ、スチレンユニットの代わりに α -メチルスチレンユニットを用いたものでもよい。

【0016】

アクリロニトリル-スチレン共重合体 (b) において、その共重合体のアクリロニトリルユニットが 20 重量%を下回るものを用いた場合、 α オレフィン単位

とN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体(a)との樹脂組成物の力学的性質が低下し、非常に脆くなるなどの問題がある。またアクリロニトリルスチレン共重合体(b)において、その共重合体のアクリロニトリルユニットが35重量%を越えるものを用いた場合、熱変形温度はさほど変化しないが、アクリロニトリルの変質が生じ易く、色相が悪化したり、吸湿性が悪化するなどの問題がある。

【0017】

本発明において、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(c)は、その共重合体中、アクリロニトリルユニットを20~35重量%、スチレンユニットを80~65重量%としたものを100重量部として、これにブタジエンユニットを1~40重量部としたものを用いることができ、スチレンユニットの代わりに α -メチルスチレンユニットを用いたものでもよい。

【0018】

アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(c)は、その共重合体中のアクリロニトリルユニットが20重量%を下回る場合には、共重合体(a)との熱力学的な親和性が損なわれる。また、アクリロニトリルユニットが35重量%を越える場合には、熱変形温度はさほど変化しないが、アクリロニトリルの変質が生じ易く、色相が悪化したり、吸湿性が悪化するなどの問題がある。

【0019】

アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(c)は、その共重合体中のブタジエンユニットが40重量%を越えるものを用いた場合、共重合体(a)との熱力学的な親和性が損なわれ、樹脂組成物としての色相が悪化するなどの問題がある。

【0020】

本発明の請求項に記載の式(i)と式(ii)からなる共重合体(a)、共重合体(b)及び共重合体(c)の合成方法としては公知の重合法が利用できる。公知の重合法としては、例えば、塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法及び乳化重合法などを挙げることができるがこれに限定されるものではない。

【0021】

また、共重合体 (a) において、この他の合成法として、ビニル系モノマーと無水マレイン酸とを共重合反応により式 (i) の化合物を含む共重合体を作成して、無水マレイン酸部位に 1 級アミン化合物を反応させてイミド化反応を行わせることで式 (i i) の化合物構造に対応するマレイミドの N 置換基を導入して本発明の目的とする共重合体を得ることもできる。

【0022】

この場合の 1 級アミンとは、式 (i i) に対応する N-フェニル置換マレイミドが合成できるようなアニリンの 2～6 位置に置換基を導入した物質などを用いることができる。

【0023】

本発明の樹脂組成物を用いてなる光学フィルムにおいて、それぞれの共重合体はその平均分子量が、ポリスチレン換算の重量平均分子量として 5×10^3 以上 5×10^6 以下である。重量平均分子量 5×10^6 を越える場合、及び 5×10^3 未満の場合には成形加工が困難となるので好ましくない。

【0024】

本発明の光学フィルムにおいて、それぞれの樹脂組成物を用いてなるフィルムは延伸配向させることで負の複屈折性を示す。

【0025】

共重合体 (a) と、共重合体 (b) 又は共重合体 (c) からなる樹脂組成物を得る方法としてはこれらの共重合体をインターナルミキサーや押出機などを用いて加熱熔融混練することで得ることができ、また溶剤を用いた溶液ブレンドによっても得ることが可能である。

【0026】

本発明の光学フィルムにおいて、樹脂組成物の各共重合体の配合比率としては、特に限定されないが、耐熱性と力学特性の観点から、共重合体 (a) 30～95 重量%、共重合体 (b) 70～5 重量%又は共重合体 (c) 70～5 重量%が好ましい。さらに好ましくは、耐熱性と力学特性の観点から、共重合体 (a) 40～90 重量%、共重合体 (b) 60～10 重量%又は共重合体 (c) 60～10 重量%である。

【 0 0 2 7 】

本発明の光学フィルムにおける共重合体（a）と、共重合体（b）及び／又は共重合体（c）からなる樹脂組成物は熱力学的親和性を示し、透明性に優れ、耐衝撃性、強度などの力学特性が向上させ、T gが高くなり耐熱性も向上させることができる。

【 0 0 2 8 】

以下、光学フィルムの成形法について説明する。

【 0 0 2 9 】

光学フィルムは、係る樹脂組成物を押出成形法、溶液流延法（溶液キャスト法）などを用いて成形することで得ることができる。

【 0 0 3 0 】

以下、押出成形法によるフィルム作成方法を述べる。

【 0 0 3 1 】

押出成形では上述のようにして得られる共重合体をT型ダイスと称されるような薄いダイス隙間を通して引き取りを行うことで、任意の厚みのフィルムを得ることができる。

【 0 0 3 2 】

フィルム成形に用いる前述の共重合体からなる樹脂組成物は、予め80℃から130℃の温度範囲にて加熱乾燥を行うことが望ましく、これにより成形のガス発泡などによる外観不良を抑制することができる。押出成形の際、望む厚みと光学純度に応じて異物を濾過するためのフィルターを設置することが望ましい。

【 0 0 3 3 】

押出成形条件としては加熱、剪断応力によって共重合体が熔融流動するT gよりも十分に高温度にて剪断速度1, 000 s e c⁻¹未満での加工を行うことが望ましい。ダイス通過後の熔融状態のフィルムは冷却固化のために低温度金属ロールやスチールベルトなどを利用することができる。

【 0 0 3 4 】

フィルムの押出成形制御は、それぞれフィルムの流動方向と幅方向及び厚み方向の分子鎖配向度ができるだけ一様であるような条件を設定することが重要であ

る。即ち、フィルムの任意部分の3次元屈折率が大きく異なると、これに続く一軸延伸配向制御によって発現させられる3次元屈折率もフィルムの評価位置によってさらに大きく異なるためである。

【0035】

フィルムの押出成形において、得られるフィルム任意部分の3次元屈折率を出るだけ一様にするための方法としては、広く知られる成形加工技術を用いることができる。即ち、ダイスからの樹脂の吐出を位置によって均一にする操作や、吐出後のフィルム冷却工程を均一にする操作及びこれに関する装置などが用いられる。

【0036】

溶液流延法（溶液キャスト法）を用いて延伸配向用のフィルムを作成する場合、共重合体が可溶性を示す溶剤を選択し、その中から必要に応じて1種類又は複数用いることができる。

【0037】

以下、溶液流延法（溶液キャスト法）によるフィルム作成方法を述べる。

【0038】

この溶液流延法（溶液キャスト法）の溶剤としては、塩化メチレン、クロロホルム、クロルベンゼン、トルエン、キシレン、メチルエチルケトンなどを用いることができるが、溶剤の選択、組合わせについてはこれに限定されるものではない。特に、溶剤揮発速度制御の目的から良溶剤（例えば、塩化メチレン、クロロホルムなど）と貧溶剤（例えば、メタノール、エタノール等のアルコール類）を組み合わせることもできる。

【0039】

溶液流延法（溶液キャスト法）におけるフィルムからの溶剤の除去は、加熱条件の設定により、フィルムに気泡や内部空隙を形成しないように行うことが重要であり、後に続く延伸配向操作時点にて残留溶剤濃度が数千ppm～2wt%以下にあることが望ましい。

【0040】

フィルムの延伸配向操作によって、均一な光学異方性を発現させるためには、

前述の溶液流延法（溶液キャスト法）などにより作成する際に不均一な配向や残留歪みがなく、光学的に等方性となるように行うことが望ましい。

【0041】

溶液流延法（溶液キャスト法）による基材の乾燥においては、加熱条件の設定により、フィルムに気泡や内部空隙を形成しないように行うことが重要である。

【0042】

本発明の樹脂組成物を用いてなる光学フィルムは必要に応じて熱安定剤や紫外線安定剤などの添加剤や可塑剤を加えてもよい。これら可塑剤や安定剤などの添加剤としては樹脂材料用として公知のものを使用してもよい。ただし、これらの添加剤や可塑剤は本発明の所期の目的を損なわない範囲で配合する必要がある。

【0043】

本発明の延伸配向させた光学フィルムにおいて、一軸延伸配向法は、自由幅一軸延伸、定幅一軸延伸などがあり、これに対応する操作が可能な装置としてはロール延伸機、テンター型延伸機などが知られており、小型のものでは引張試験機、一軸延伸機、逐次二軸延伸機、同時二軸延伸機などを用いることができ、二軸延伸配向法としては、逐次二軸延伸機、同時二軸延伸機などがあり要求される光学特性に応じて用いられる。

【0044】

延伸配向操作としては、前述の負の複屈折性を発現させる方法に記載したガラス転移温度領域とされる $T_g - 20^\circ\text{C}$ から $+20^\circ\text{C}$ の範囲内にて行うことが重要である。 $T_g + 20^\circ\text{C}$ を越える温度での延伸配向操作では、フィルムの複屈折はほとんど発現せず、 $T_g - 20^\circ\text{C}$ より低温の温度領域でも延伸配向させる事が困難である。

【0045】

本発明の一軸延伸配向させた光学フィルムにおいて、係る温度条件下にて当該樹脂組成物を用いてなる上述の無配向の光学フィルムの状態から一軸延伸配向すると、図1に示すようにフィルム面内の三次元屈折率が、延伸方向を面内の x 軸として、面内の直交方向を y 軸、面外の垂直方向を z 軸と置いた場合に、 x 軸方向屈折率を n_x 、 y 軸方向屈折率を n_y 、 z 軸方向屈折率を n_z とすると、図2

に示す $n_z \geq n_y > n_x$ となるものを得ることができる。

【0046】

さらに、二軸延伸配向させた光学フィルムにおいて、同様に係る温度条件下にて当該樹脂組成物を用いてなる上述の無配向の光学フィルムの状態から二軸延伸配向すると、図1に示すようにフィルム面内の三次元屈折率が、面内の延伸方向をx軸及びy軸として、面外の垂直方向をz軸と置く図2の場合に、x軸方向屈折率を n_x 、y軸方向屈折率を n_y 、z軸方向屈折率を n_z とすると、図3に示すように $n_z > n_y \geq n_x$ 又は $n_z > n_x \geq n_y$ となるものを得ることができる。即ち、本発明の光学フィルムは延伸配向することによって、負の複屈折性を示す。

【0047】

本発明の光学フィルムにおいて、フィルム表面の保護を目的としてハードコートなどを施してもよく、コート剤として公知のものを用いることができる。

【0048】

本発明の光学フィルムの屈折率は1.50以上であり、ガラス転移温度 (T_g) が100℃以上、好ましくは120℃以上、特に好ましくは140℃以上を示すものとなる。

【0049】

【実施例】

以下、本発明を実施例にて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。各物性値の測定方法を以下に示す。

<透明性；光線透過率及びヘーズ>

①光線透過率測定はJIS K7150（1981年版）に準拠して測定した。

【0050】

②ヘーズ測定はJIS K7150（1981年版）に準拠して測定した。

<複屈折の正負判定、位相差量の測定>

①偏光顕微鏡 ($\lambda/4$ 板加色判定法)

栗屋裕，高分子素材の偏光顕微鏡入門，アグネ技術センター，第5章，pp

78-82, 2001に記載の $\lambda/4$ 板による加色判定法により複屈折の正負判定を実施した。

【0051】

②偏光顕微鏡 (Senarmont 干渉法)

栗屋裕, 高分子素材の偏光顕微鏡入門, アグネ技術センター, 第5章, pp 94-96, 2001に記載のセナルモン・コンペンセーターを用いた位相差量の測定法を用いた。

<屈折率の測定>

JIS K7142 (1981年版)に準拠して測定した。

<熱的性質; ガラス転移温度の測定>

セイコー電子製DSCを用いて測定した。

<力学特性の判定>

前述の溶液流延法 (溶液キャスト法) によりフィルムを作成する際に、溶剤が揮発することでフィルム収縮するが、力学的に脆いものはこの時点で亀裂を生じることから、この亀裂の発生の有無を目視判定により実施した。

【0052】

実施例 1

1リッターオートクレーブ中、トルエン400ml溶剤に対して重合開始剤としてパーブチルネオデカノエート1mmol存在下にてN-フェニルマレイミドを0.42molとイソブテンを4.05molとを60℃、5時間重合反応させて、N-フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体 (a) (PS換算の数平均分子量 $M_n = 162,000$ 、分子量分布 $M_w/M_n = 2.6$)を得た。

【0053】

共重合体 (b) として、ダイセルポリマー製のアクリロニトリル-スチレン共重合体 (商品名: セビアンN080、PS換算の数平均分子量 $M_n = 130,000$)を用いた。

【0054】

この共重合体 (a) 50重量%と共重合体 (b) 50重量%とからなるブレンド物を25重量%としてこれに塩化メチレン75重量%を加えた溶液を調整した

ものをポリエチレンテレフタレートフィルム（以下PETと略記する）上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、110℃から130℃の温度にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて120℃で4時間乾燥して約100 μ mのフィルムを得た。

【0055】

このフィルムの光線透過率は92%、ヘイズは0.3%、屈折率は1.57、ガラス転移温度（T_g）は150℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【0056】

このフィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延伸装置を用いて、温度160℃、延伸速度5mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸により+50%延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示しており、フィルム100 μ m当たりの位相差量は-70nmであった。

【0057】

実施例2

1リッターオートクレーブ中、トルエン400ml溶剤に対して重合開始剤としてパーブチルネオデカノエート1mmol存在下にてN-（2-メチルフェニル）マレイミドを0.42molとイソブテンを4.05molとを60℃、5時間重合反応させて、N-（2-メチルフェニル）マレイミドとイソブテンからなる共重合体（a）（PS換算の数平均分子量M_n=160,000、分子量分布M_w/M_n=2.7）を得た。

【0058】

共重合体（b）として、ダイセルポリマー製アクリロニトリルスチレン共重合体（商品名：セビアンN080、PS換算の数平均分子量M_n=130,000）を用いた。

【0059】

この共重合体（a）50重量%と共重合体（b）50重量%からなるブレンド物を25重量%としてこれに塩化メチレン75重量%を加えた溶液を調整したものをPET上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、110℃から120℃の温度にてそれぞれ1時間乾

燥し、真空乾燥機にて120℃で4時間乾燥して約100 μ mのフィルムを得た。

【0060】

このフィルムの光線透過率は88%、ヘイズは0.5%、屈折率は1.57、ガラス転移温度(T_g)は150℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【0061】

このフィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延伸装置を用いて、温度170℃、延伸速度5mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸により+50%延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示しており、フィルム100 μ m当たりの位相差量は-70nmであった。

【0062】

実施例 3

実施例1と同じ共重合体(a)を用いた。

【0063】

共重合体(c)としてダイセル製アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(商品名:セビアンVT-180、PS換算の数平均分子量M_n=36,000、M_w/M_n=2.9)を用いた。

【0064】

この共重合体(a)90重量%と共重合体(c)10重量%からなるブレンド物を25重量%としてこれに塩化メチレン75重量%を加えた溶液を調整したものをPET上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、120℃から160℃の温度にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて180℃で4時間乾燥して約100 μ mのフィルムを得た。

【0065】

このフィルムの光線透過率は88%、ヘイズは0.9%、屈折率は1.57、ガラス転移温度(T_g)は190℃であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【0066】

このフィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延

伸装置を用いて、温度 210℃、延伸速度 5 mm/min. の条件にて自由幅一軸延伸により +50% 延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示し、フィルム 100 μ m 当たりの位相差量は -60 nm であった。

【0067】

実施例 4

実施例 1 と同じ共重合体 (a)、共重合体 (b) を用いた。

【0068】

この共重合体 (a) 40 重量% と共重合体 (b) 60 重量% からなるブレンド物を 25 重量% としてこれに塩化メチレン 75 重量% を加えた溶液を調整したものを PET 上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に 60℃ にて 4 時間、80℃ から 90℃ の温度にてそれぞれ 1 時間乾燥し、真空乾燥機にて 90℃ で 4 時間乾燥して約 100 μ m のフィルムを得た。

【0069】

このフィルムの光線透過率は 88%、ヘイズは 0.5%、屈折率は 1.57、ガラス転移温度 (T_g) は 140℃ であり、このフィルムに亀裂はなかった。

【0070】

このフィルムから 5 cm × 5 cm の小片を切り出し、柴山科学機械製の二軸延伸装置を用いて、温度 130℃、延伸速度 5 mm/min. の条件にて自由幅一軸延伸により +50% 延伸した。延伸したフィルムは負の複屈折性を示しており、フィルム 100 μ m 当たりの位相差量は -35 nm であった。

【0071】

比較例 1

実施例 1 と同様にして N-フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体 (a) を得た。

【0072】

この N-フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体 (a) 25 重量% と塩化メチレン 75 重量% の溶液を調整したものを PET フィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。

【0073】

剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、120℃から160℃の温度にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて180℃で4時間乾燥して約100 μ mのフィルムを得た。

【0074】

このフィルムの光線透過率は92%、ヘイズは0.3%、屈折率は1.57、ガラス転移温度(T_g)は192℃であり、このフィルムに微細な亀裂が確認された。

【0075】

このフィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、柴山科学機械製延伸装置を用いて、温度210℃、延伸速度15mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸により+50%延伸した。延伸したフィルムの複屈折は正であり、フィルム100 μ m当たりの位相差量は+70nmであった。

【0076】

比較例2

実施例2と同様にしてN-(2-メチルフェニル)マレイミドとイソブテンからなる共重合体(a)を得た。

【0077】

この共重合体(a)25重量%と塩化メチレン75重量%の溶液を調整したものをPETフィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に60℃にて4時間、80℃から90℃の温度にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて90℃で4時間乾燥して約100 μ mのフィルムを得た。

【0078】

このフィルムの光線透過率は88%、ヘイズは0.5%、屈折率は1.57、ガラス転移温度(T_g)は102℃であり、このフィルムに微細な亀裂が確認された。

【0079】

このフィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、柴山科学機械製延伸装置を用いて、温度220℃、延伸速度5mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸

により + 5 0 % 延伸した。延伸したフィルムの複屈折は負であり、フィルム 1 0 0 μm 当たりの位相差量は - 1 2 0 nm であった。

【 0 0 8 0 】

【発明の効果】

本発明の光学フィルムは、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を必要とする光学フィルムに好適に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

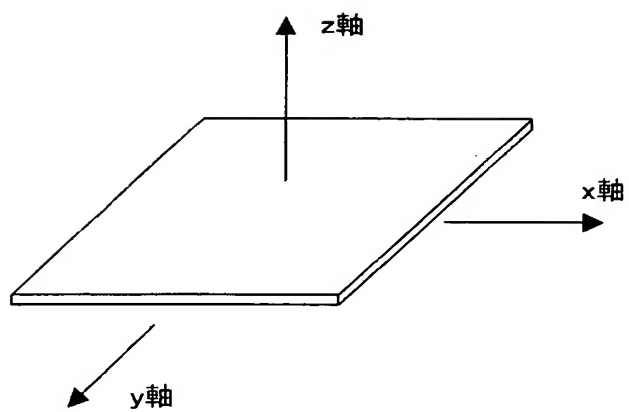
【図 1】 樹脂フィルムの 3 次元屈折率の軸方向を示す図である。

【図 2】 負の屈折率材料の一軸延伸による 3 次元屈折率を示す図である。

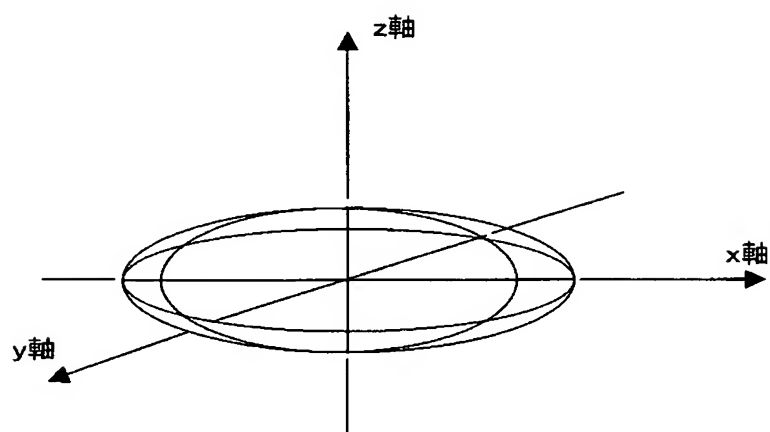
【図 3】 負の屈折率材料の二軸延伸による 3 次元屈折率を示す図である。

【書類名】 図面

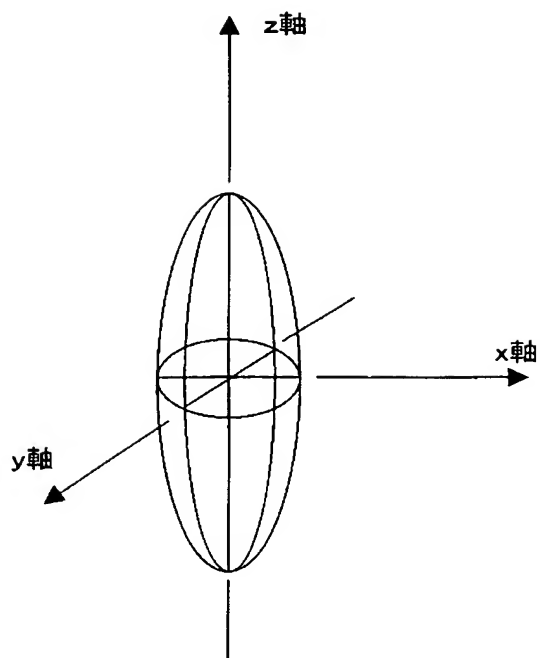
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 本発明の目的は、耐熱性、力学性に優れかつ負の複屈折性を示す樹脂組成物を用いてなる光学フィルムを提供することにある。

【解決手段】 α -オレフィン単位及びN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体と、アクリロニトリル-スチレン共重合体又はアクリロニトリル-ブタジエンスチレンユニット共重合体とからなる樹脂組成物であって、それぞれの共重合体の分子量がポリスチレン換算の重量平均分子量として 5×10^3 以上 5×10^6 以下である樹脂組成物をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下 T_g と称する）を基準として、 $T_g \pm 20^\circ\text{C}$ の範囲で延伸加工し、負の複屈折性を示す光学フィルムを用いる。

【選択図】 選択図なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 9 4 8 8 8
受付番号	5 0 3 0 0 5 3 1 0 6 9
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0 0 9 5
作成日	平成 1 5 年 4 月 1 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成15年 3月31日
-------	-------------

次頁無

特願 2 0 0 3 - 0 9 4 8 8 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 3 3 0 0]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 1 2 月 2 日
[変更理由] 住所変更
住 所 山口県新南陽市開成町 4 5 6 0 番地
氏 名 東ソー株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 4 月 2 1 日
[変更理由] 住所変更
住 所 山口県周南市開成町 4 5 6 0 番地
氏 名 東ソー株式会社